

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s): KAMO, Hiroshi et al.

Application No.:

Group:

Filed: March 4, 2002

Examiner:

For: A RESIN COMPOSITION



L E T T E R

Assistant Commissioner for Patents
Box Patent Application
Washington, D.C. 20231

March 4, 2002
0071-0470P-SP

Sir:

Under the provisions of 35 USC 119 and 37 CFR 1.55(a), the applicant hereby claims the right of priority based on the following application(s):

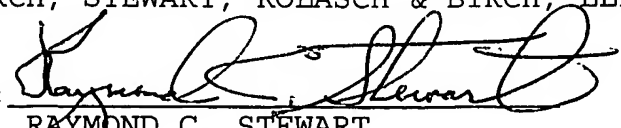
<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Filed</u>
JAPAN	2001-064678	03/08/01
JAPAN	2001-270006	09/06/01

A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to deposit Account No. 02-2448 for any additional fees required under 37 C.F.R. 1.16 or under 37 C.F.R. 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

By: 

RAYMOND C. STEWART

Reg. No. 21,066

P. O. Box 747

Falls Church, Virginia 22040-0747

Attachment
(703) 205-8000
/cqc

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

BSKB 703205-8000
KAMO et al
00-71-0470P
March 4, 2002
1082

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2001年 3月 8日

出願番号

Application Number:

特願2001-064678

[ST.10/C]:

[JP2001-064678]

出願人

Applicant(s):

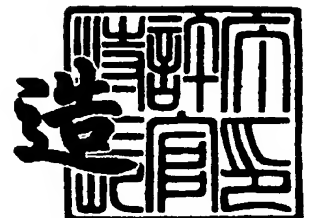
旭化成株式会社



2002年 2月 8日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2002-3004984

【書類名】 特許願

【整理番号】 X13-00262

【提出日】 平成13年 3月 8日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C08L 71/12
C08L 67/03

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市中袖 5 番地 1 旭化成工業株式会社内

【氏名】 加茂 弘

【特許出願人】

【識別番号】 000000033

【氏名又は名称】 旭化成工業株式会社

【代表者】 山本 一元

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011187

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 樹脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) 20,000 以下の分子量のポリマーを 5～30 重量%含有し、かつ分子量分布 (M_w/M_n) が 1.8～3.5 であるポリフェニレンエーテル系樹脂 30～99 重量部および (B) 液晶ポリエステル 1～70 重量部、からなる樹脂組成物。

【請求項 2】 (A) が 70～99 重量部、(B) が 1～30 重量部である請求項 1 記載の樹脂組成物。

【請求項 3】 (A) と (B) の合計 100 重量部に対して、(C) 無機充填剤が 0.1～200 重量部添加されることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性および難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性および流動性に優れたポリフェニレンエーテル系樹脂組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

一般に、ポリフェニレンエーテルは耐熱性、耐熱水性、寸法安定性および機械的、電氣的性質などの優れた性質を有する樹脂であるが、一方、その熔融粘度が高いために成形性が悪い、また耐薬品性が悪い、耐衝撃性が低い等の欠点を有している。ポリフェニレンエーテルのこのような欠点を改良するためポリフェニレンエーテルと他の樹脂とのアロイ化、あるいはポリフェニレンエーテルの変性が従来から行われてきた。

【0003】

ポリフェニレンエーテルにポリスチレンをアロイして流動性を改良することが広く知られているが、耐熱性、耐薬品性が低下するなどの問題があった。ポリフ

フェニレンエーテルと他の樹脂とのアロイ化に関連する技術として、例えば特開昭56-115357号公報に、ポリフェニレンエーテルなどの重合体に液晶ポリエステルを配合し、ポリフェニレンエーテルの溶融加工性を改良することが提案されているが、耐衝撃性、耐薬品性、流動性の観点において、十分なものではなかった。また特開平2-97555号公報には、はんだ耐熱性を向上させる目的で液晶ポリエステルに各種のポリアリレンオキサイドを配合することが提案され、さらには特開平6-122762号公報には、アミン類で変性したポリフェニレンエーテルと液晶ポリエステルを配合することが提案されているが、いずれも耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性、難燃性バランスにおいて十分なものではなかった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性および難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性および流動性に優れたポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を提供することである。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者は上記課題を達成する技術を鋭意検討した結果、特定の分子量分布を有し、かつ特定の分子量成分を有するポリフェニレンエーテル系樹脂と液晶ポリエステルを特定の比率にて配合することにより、耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性および難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性および流動性に優れた樹脂組成物が得られることを見だし、本発明を完成するに至った。

【0006】

すなわち本発明は、

1. (A) 20,000以下の分子量のポリマーを5～30重量%含有し、かつ分子量分布(M_w/M_n)が1.8～3.5であるポリフェニレンエーテル系樹脂30～99重量部および(B)液晶ポリエステル1～70重量部、からなる樹脂組成物、

2. (A) が 7 0 ~ 9 9 重量部、(B) が 1 ~ 3 0 重量部である上記 1 記載の樹脂組成物、

3. (A) と (B) の合計 1 0 0 重量部に対して、(C) 無機充填剤が 0. 1 ~ 2 0 0 重量部添加されることを特徴とする上記 1 または 2 に記載の樹脂組成物、を提供するものである。

【0 0 0 7】

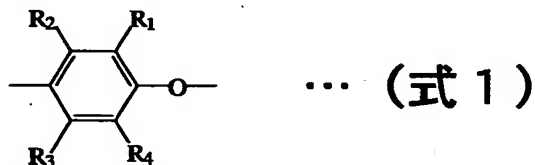
【発明の実施の形態】

以下、本願発明について具体的に説明する。

本発明の (A) ポリフェニレンエーテル系樹脂とは、(式 1) の繰り返し単位構造

【0 0 0 8】

【化 1】



【0 0 0 9】

(R₁、R₄は、それぞれ独立して、水素、第一級もしくは第二級の低級アルキル、フェニル、アミノアルキルまたは炭化水素オキシを表す。R₂、R₃は、それぞれ独立して、水素、第一級もしくは第二級の低級アルキルまたはフェニルを表す。)

からなり、還元粘度 (0. 5 g / d l、クロロホルム溶液、3 0 ℃測定) が、0. 1 5 ~ 1. 0 d l / g の範囲にあるホモ重合体及び／または共重合体である。

さらに好ましい還元粘度は、0. 2 0 ~ 0. 7 0 d l / g の範囲、最も好ましくは 0. 4 0 ~ 0. 6 0 の範囲である。

【0 0 1 0】

具体例としては、ポリ (2, 6 - ジメチル - 1, 4 - フェニレンエーテル)、ポリ (2 - メチル - 6 - エチル - 1, 4 - フェニレンエーテル)、ポリ (2 - メチル - 6 - フェニル - 1, 4 - フェニレンエーテル)、ポリ (2, 6 - ジクロロ

ー 1, 4-フェニレンエーテル) 等が挙げられ、さらに、2, 6-ジメチルフェノールと他のフェノール類 (例えば、2, 3, 6-トリメチルフェノールや2-メチル-6-ブチルフェノール) との共重合体のようなポリフェニレンエーテル共重合体も挙げられる。中でもポリ (2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンエーテル)、2, 6-ジメチルフェノールと2, 3, 6-トリメチルフェノールとの共重合体が好ましく、さらにポリ (2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンエーテル) が好ましい。

【 0 0 1 1 】

本発明で使用する (A) ポリフェニレンエーテルの製造方法の例として、米国特許第 3 3 0 6 8 7 4 号明細書記載の第一銅塩とアミンのコンプレックスを触媒として用い、2, 6-キシレノールを酸化重合する方法がある。米国特許第 3 3 0 6 8 7 5 号、同第 3 2 5 7 3 5 7 号および同第 3 2 5 7 3 5 8 号の明細書、特公昭 5 2 - 1 7 8 8 0 号および特開昭 5 0 - 5 1 1 9 7 号および同 6 3 - 1 5 2 6 2 8 号の各公報等に記載された方法も (A) ポリフェニレンエーテルの製造方法として好ましい。

【 0 0 1 2 】

本発明の (A) ポリフェニレンエーテル系樹脂は、重合行程後のパウダーのまま用いてもよいし、押出機などを用いて、窒素ガス雰囲気下あるいは非窒素ガス雰囲気下、脱揮下あるいは非脱揮下にて溶融混練することでペレット化して用いてもよい。

本発明の (A) ポリフェニレンエーテル系樹脂は、種々のジエノフィル化合物により官能化されたポリフェニレンエーテルも含まれる。ジエノフィル化合物としては例えば無水マレイン酸、マレイン酸、フマル酸、フェニルマレイミド、イタコン酸、アクリル酸、メタクリル酸、メチルアリレート、メチルメタクリレート、グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート、ステアリルアクリレート、スチレンなどの化合物が挙げられる。さらにこれらジエノフィル化合物により官能化する方法としては、ラジカル発生剤存在下あるいは非存在下で押出機などを用い、脱揮下あるいは非脱揮下にて溶融状態で官能化する方法、あるいはラジカル発生剤存在下あるいは非存在下で、ポリフェニレンエーテルが非溶融状

態で官能化する方法等が挙げられる。

【0013】

本発明の(A)ポリフェニレンエーテル系樹脂には、ポリフェニレンエーテル樹脂単独又はポリフェニレンエーテル樹脂と芳香族ビニル系重合体との混合物であり、さらに他の樹脂が混合されたものも含まれる。芳香族ビニル系重合体とは、例えば、アタクティックポリスチレン、シンジオタクティックポリスチレン、ハイインパクトポリスチレン、アクリロニトリル-スチレン共重合体などが挙げられる。ポリフェニレンエーテル樹脂と芳香族ビニル系重合体との混合物を用いる場合は、ポリフェニレンエーテル樹脂と芳香族ビニル系重合体との合計量に対して、ポリフェニレンエーテル樹脂が70wt%以上、好ましくは80wt%以上、さらに好ましくは90wt%以上である。

【0014】

本発明に用いるポリフェニレンエーテル系樹脂の数平均分子量(M_n)、重量平均分子量(M_w)および分子量分布(M_w/M_n)は以下の方法で求めることができる。東洋曹達(株)製ゲルパーミエーションクロマトグラフィーHL-802RTSで標準ポリスチレンを用いて検量線を作成し測定する。標準ポリスチレンの分子量は264、364、466、568、2800、16700、186000、1260000のものを用いる。カラムは東洋曹達(株)製TSK gel G2500HXL、TSK gel G3000HXL、TSK gel G4000HXL、TSK gel G5000HXLを直列につないで使用する。また、溶媒はクロロホルム、溶媒の流量は0.9ml/min、カラムの温度は40℃で測定する。検出部のUVの波長は標準ポリスチレンが254nm、ポリフェニレンエーテル系樹脂が283nmで測定する。

【0015】

本発明の樹脂組成物におけるポリフェニレンエーテル系樹脂は、樹脂組成物よりなるペレットあるいは成形品を室温にてクロロホルムに溶解させ、濾過することによって不溶分を取り除き、可溶分を大量のメタノール中に再沈殿させ、さらにメタノールにて洗浄後、減圧乾燥することにより得ることもできる。

本発明のポリフェニレンエーテル系樹脂の分子量分布(M_w/M_n)は、1.

8～3.5であり、好ましくは2.0～3.4であり、さらに好ましくは2.2～3.3である。1.8未満の場合は流動性が低下し、3.5を越えると耐衝撃性と耐薬品性が低下し好ましくない。

【0016】

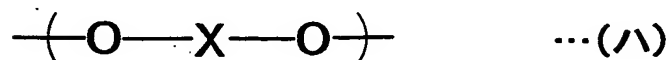
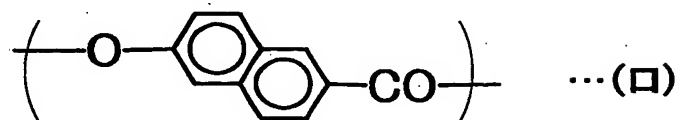
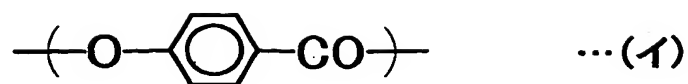
また本発明のポリフェニレンエーテル系樹脂は、20,000以下の分子量のポリマーを5～30重量%、好ましくは10～25重量%、より好ましくは12～24重量%含有する。これらの範囲内にあることで、耐衝撃性、耐薬品性と流動性という相反する特性を同時に高いレベルで達成できる。含有量が5重量%未満の場合は大幅に流動性が低下し、30重量%を超えると耐衝撃性と耐薬品性が低下し好ましくない。

【0017】

本発明の(B)液晶ポリエステルはサーモトロピック液晶ポリマーと呼ばれるポリエステルで、公知のものを使用できる。例えば、p-ヒドロキシ安息香酸およびポリエチレンテレフタレートの主構成単位とするサーモトロピック液晶ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸および2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸を主構成単位とするサーモトロピック液晶ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸および4,4'-ジヒドロキシビフェニルならびにテレフタル酸を主構成単位とするサーモトロピック液晶ポリエステルなどが挙げられ、特に制限はない。本発明で使用される(B)液晶ポリエステルとしては、下記構造単位(イ)、(ロ)、および必要に応じて(ハ)および/または(ニ)からなるものが好ましく用いられる。

【0018】

【化 2】

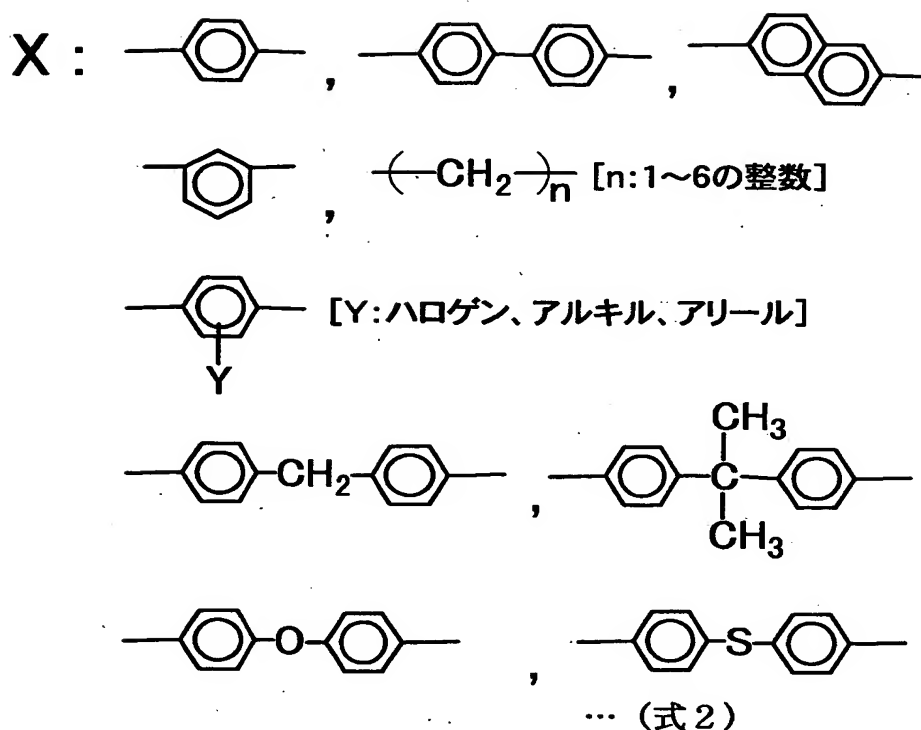


【0019】

ここで、構造単位（イ）、（ロ）はそれぞれ、p-ヒドロキシ安息香酸から生成したポリエステル構造単位と、2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸から生成した構造単位である。構造単位（イ）、（ロ）を使用することで、優れた耐熱性、流動性や剛性などの機械的特性のバランスに優れた本発明の熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。上記構造単位（ハ）、（ニ）中のXは、下記（式2）よりそれぞれ任意に1種あるいは2種以上選択することができる。

【0020】

【化 3】



【0021】

構造式 (ハ) において好ましいのは、エチレングリコール、ハイドロキノン、4, 4' -ジヒドロキシビフェニル、2, 6 -ジヒドロキシナフタレン、ビスフェノール A それぞれから生成した構造単位であり、さらに好ましいのは、エチレングリコール、4, 4' -ジヒドロキシビフェニル、ハイドロキノンであり、特に好ましいのは、エチレングリコール、4, 4' -ジヒドロキシビフェニルである。構造式 (ニ) において好ましいのは、テレフタル酸、イソフタル酸、2, 6 -ジカルボキシナフタレンそれぞれから生成した構造単位であり、さらに好ましいのは、テレフタル酸、イソフタル酸である。

【0022】

構造式 (ハ) および構造式 (ニ) は、上記に挙げた構造単位を少なくとも 1 種あるいは 2 種以上を併用することができる。具体的には、2 種以上併用する場合、構造式 (ハ) においては、1) エチレングリコールから生成した構造単位／ハイドロキノンから生成した構造単位、2) エチレングリコールから生成した構造

単位／4，4'-ジヒドロキシビフェニルから生成した構造単位、3) ハイドロキノンから生成した構造単位／4，4'-ジヒドロキシビフェニルから生成した構造単位、などを挙げるができる。

【0023】

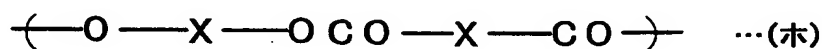
また、構造式(二)においては、1) テレフタル酸から生成した構造単位／イソフタル酸から生成した構造単位、2) テレフタル酸から生成した構造単位／2，6-ジカルボキシナフタレンから生成した構造単位、などを挙げるができる。ここでテレフタル酸量は2成分中、好ましくは40wt%以上、さらに好ましくは60wt%以上、特に好ましくは80wt%以上である。テレフタル酸量を2成分中40wt%以上とすることで、比較的流動性、耐熱性が良好な樹脂組成物となる。液晶ポリエステル(B)成分中の構造単位(イ)、(ロ)、(ハ)、(ニ)の使用分割は特に限定されない。ただし、構造単位(ハ)と(ニ)は基本的にはほぼ等モル量となる。

【0024】

また、構造単位(ハ)、(ニ)からなる構造単位(ホ)を、(B)成分中の構造単位として使用することもできる。具体的には、1) エチレングリコールとテレフタル酸から生成した構造単位、2) ハイドロキノンとテレフタル酸から生成した構造単位、3) 4，4'-ジヒドロキシビフェニルとテレフタル酸から生成した構造単位、4) 4，4'-ジヒドロキシビフェニルとイソフタル酸から生成した構造単位、5) ビスフェノールAとテレフタル酸から生成した構造単位、などを挙げるができる。

【0025】

【化4】



【0026】

本発明の(B)液晶ポリエステル成分には、必要に応じて本発明の特徴と効果を損なわない程度の少量の範囲で、他の芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール、芳香族ヒドロキシカルボン酸から生成する構造単位を導入することができる。本

発明の（Ｂ）成分の溶融時での液晶状態を示し始める温度（以下、液晶開始温度という）は、好ましくは $150\sim 350^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $180\sim 320^{\circ}\text{C}$ である。液晶開始温度をこの範囲にすることは、得られる樹脂組成物を好ましい色調と耐熱性と成形加工性バランスの良いものとする。

【 0 0 2 7 】

本発明の（Ｂ）液晶ポリエステル成分の 25°C 、 1MHz における誘電正接（ $\tan\delta$ ）は、好ましくは 0.03 以下であり、さらに好ましくは 0.025 以下である。この誘電正接の値が小さければ小さいほど、誘電損失は小さくなり、この樹脂組成物を電気・電子部品の原料として用いる時、発生する電氣的ノイズが抑制され好ましい。特に 25°C 、高周波数領域下、すなわち $1\sim 10\text{GHz}$ 領域において、誘電正接（ $\tan\delta$ ）は、好ましくは 0.03 以下であり、さらに好ましくは 0.025 以下である。

【 0 0 2 8 】

本発明の（Ｂ）液晶ポリエステル成分の見かけの溶融粘度（液晶開始温度 $+30^{\circ}\text{C}$ でずり速度 $100/\text{秒}$ ）は、好ましくは $10\sim 3,000\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、さらに好ましくは $10\sim 2,000\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、特に好ましくは $10\sim 1,000\text{Pa}\cdot\text{s}$ である。見かけの溶融粘度をこの範囲にすることは、得られる組成物の流動性を好ましいものとする。本発明の（Ｂ）成分の溶融状態（液晶状態）における熱伝導率は、好ましくは $0.1\sim 2.0\text{W}/\text{mK}$ 、さらに好ましくは $0.2\sim 1.5\text{W}/\text{mK}$ 、特に好ましくは $0.3\sim 1.0\text{W}/\text{mK}$ である。溶融状態（液晶状態）での熱伝導率をこの範囲にすることで、得られる組成物の射出成形サイクルを比較的短縮化することができる。

【 0 0 2 9 】

本発明における（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂の配合量は、 $30\sim 99$ 重量部で、好ましくは $70\sim 99$ 重量部で、さらに好ましくは $80\sim 95$ 重量部である。この配合量が 99 重量部より多いと、流動性が大きく低下してしまう。この配合量が 30 重量部より少ないと、耐熱性の低下を招いたり、比重が大きくなってしまい好ましくない。

本発明における（Ｂ）成分の液晶ポリエステルの配合量は、 $1\sim 70$ 重量部で

、好ましくは1～30重量部で、さらに好ましくは5～20重量部である。この配合量が70重量部より多いと、比重が大きくなってしまったり、コスト高を招く。この配合量が1重量部より少ないと、十分な流動性と耐衝撃性と耐薬品性が得られず好ましくない。

【0030】

本発明における(C)無機充填剤とは、強度付与剤として、ガラス繊維、金属繊維、チタン酸カリウム、炭素繊維、炭化ケイ素、セラミック、窒化ケイ素、マイカ、ネフェリンシナイト、タルク、ウオラストナイト、スラグ繊維、フェライト、ガラスビーズ、ガラスパウダー、ガラスバルーン、石英、石英ガラスなどの無機化合物があげられる。中でも、流動性、耐熱性、機械特性、のバランスからガラス繊維、炭素繊維が好ましく用いられ、さらに好ましくはガラス繊維が用いられる。これら無機系の充填剤の形状は限定されるものではなく、繊維状、板状、球状などが任意に選択できる。また、これらの無機系の充填剤は、2種類以上併用することも可能である。また、必要に応じて、シラン系、チタン系などのカップリング剤で予備処理して使用することができる。

【0031】

また(C)無機充填剤の配合量は、成分(A)と成分(B)の合計100重量部に対して、0.1～200重量部、好ましくは1～100重量部、さらに好ましくは2～20重量部である。この配合量が0.1より少ないと、十分な剛性と耐熱性と耐衝撃性が得られにくい。また200重量部より多いと、十分な流動性が得られにくい。

本発明では、上記の成分の他に、本発明の特徴および効果を損なわない範囲で必要に応じて他の附加的成分、例えば、酸化防止剤、難燃剤(有機リン酸エステル系化合物、シリコン化合物、フォスファゼン化合物、籠状シルセスキオキサン化合物等)、エラストマー、可塑剤(オイル、低分子量ポリエチレン、エポキシ化大豆油、ポリエチレングリコール、脂肪酸エステル類等)、難燃助剤、耐候(光)性改良剤、ポリオレフィン用造核剤、スリッパ剤、各種着色剤、離型剤等を添加してもかまわない。

【0032】

本発明の樹脂組成物は種々の方法で製造することができる。例えば、単軸押出機、二軸押出機、ロール、ニーダー、ブラベンダープラストグラフ、バンバリーミキサー等による加熱溶融混練方法が挙げられるが、中でも二軸押出機を用いた溶融混練方法が最も好ましい。この際の溶融混練温度は特に限定されるものではないが、通常150～350℃の中から任意に選ぶことができる。

このようにして得られる本発明の樹脂組成物は、従来より公知の種々の方法、例えば、射出成形、押出成形、中空成形により各種部品の成形体として成形できる。

【 0 0 3 3 】

これら成形体は、特に難燃性が要求される用途、例えば、自動車用耐熱部品あるいは事務機器用耐熱部品に好適である。自動車用耐熱部品は例えば、オルタネーターターミナル、オルタネーターコネクター、ICレギュレーター、ライトディヤード用ポテンシオメーターベース、排気ガスバルブなどの各種バルブ、燃料関係・排気系・吸気系各種パイプ、エアーインテークノズルスノーケル、インタークマニホールド、燃料ポンプ、エンジン冷却水ジョイント、キャブレターメインボディ、キャブレタースパーサー、排気ガスセンサー、冷却水センサー、油温センサー、ブレーキパッドウェアセンサー、スロットルポジションセンサー、クランクシャフトポジションセンサー、エアーフローメーター、ブレーキパッド磨耗センサー、エアコン用サーモスタットベース、暖房温風フローコントロールバルブ、ラジエーターモーター用ブラッシュホルダー、ウォーターポンプインペラー、タービンペイン、ワイパーモーター関係部品、デューストリビューター、スタータースイッチ、スターターリレー、トランスミッション用ワイヤーハーネス、ウインドウウォッシャーノズル、エアコンパネルスイッチ基板、燃料関係電磁気弁用コイル、ヒューズ用コネクター、ホーンターミナル、電装部品絶縁板、ステップモーターローター、ブレーキピストン、ソレノイドボビン、エンジンオイルフィルター、点火装置ケースなどの部品、ホイールキャップ、ランプソケット、ランプハウジング、ランプエクステンション、ランプリフレクターなどが好適である。中でも軽量性、耐熱性、難燃性、機械特性のバランスからランプエクステンション、ランプリフレクターが好適である。

【0034】

また、事務機器用耐熱部品は、例えば、エアコン部品、タイプライター部品、ワードプロセッサ部品などに代表される家庭、事務電気製品部品、オフィスコンピュータ関連部品、電話機関連部品、ファクシミリ関連部品、複写機関連部品などに好適である。

本発明を以下、実施例に基づいて説明する。但し本発明はその主旨を越えない限り以下の実施例に限定されるものではない。

【0035】

(実施例で用いる成分)

1. ポリフェニレンエーテル

PPE-1: 2, 6-ジメチルフェノールを酸化重合して得た還元粘度0.42のポリ(2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンエーテル)。

$M_w = 34,600$ 、 $M_w/M_n = 1.90$

PPE-2: 還元粘度0.46、 $M_w = 40,700$ 、 $M_w/M_n = 2.42$

PPE-3: 還元粘度0.52、 $M_w = 51,900$ 、 $M_w/M_n = 1.95$

PPE-4: 還元粘度0.51、 $M_w = 48,000$ 、 $M_w/M_n = 2.79$

PPE-5: 還元粘度0.55、 $M_w = 58,200$ 、 $M_w/M_n = 3.31$

PPE-6: 還元粘度0.57、 $M_w = 57,900$ 、 $M_w/M_n = 1.88$

PPE-7: 還元粘度0.39、 $M_w = 43,000$ 、 $M_w/M_n = 2.87$

PPE-8: 還元粘度0.37、 $M_w = 41,600$ 、 $M_w/M_n = 3.41$

【0036】

(分子量測定条件)

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(以下GPCという): 東洋曹達(株)製ゲルパーミエーションクロマトグラフィーHL-802RTSで標準ポリスチレンを用いて検量線を作成し測定した。標準ポリスチレンの分子量は264、364、466、568、2800、16700、186000、1260000のものを用了。カラムは東洋曹達(株)製TSK gel G2500HXL、TSK gel G3000HXL、TSK gel G4000HXL、TSK gel G5000HXLを直列につないで使用した。また、溶媒はクロロホルム、溶媒の流量は

0.9 ml/min、カラムの温度は40℃で測定した。検出部のUVの波長は標準ポリスチレンが254 nm、ポリフェニレンエーテル系樹脂が283 nmで測定した。

【0037】

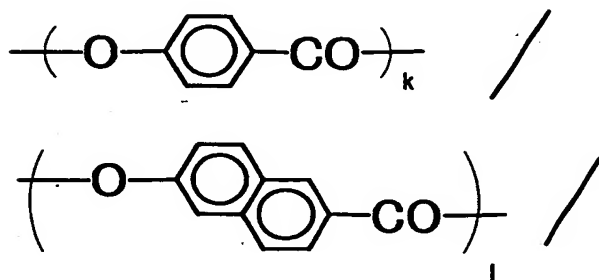
液晶ポリエステル

LCP-1：窒素雰囲気下において、p-ヒドロキシ安息香酸、2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸、無水酢酸を仕込み、加熱溶融し、重縮合することにより、以下の理論構造式を有する液晶ポリエステルを得た。

なお、組成の成分比はモル比を表す。

【0038】

【化5】



$$k/l = 0.73/0.27$$

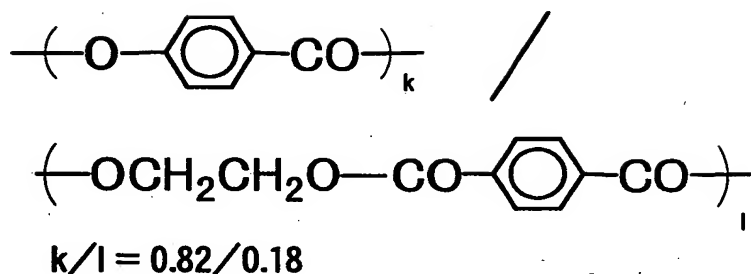
【0039】

LCP-2：窒素雰囲気下において、p-ヒドロキシ安息香酸、ポリエチレンテレフタレート、無水酢酸を仕込み、加熱溶融し、重縮合することにより、以下の理論構造式を有する液晶ポリエステルを得た。

なお組成の成分比はモル比を表す。

【0040】

【化6】



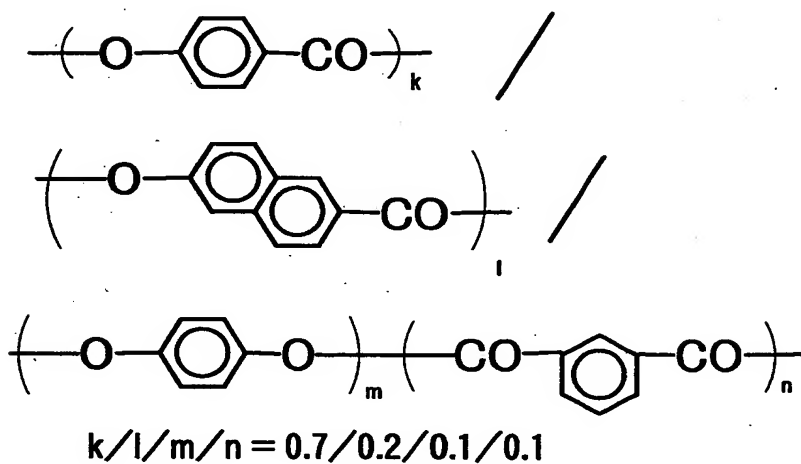
【0041】

LCP-3：窒素雰囲気下において、p-ヒドロキシ安息香酸、2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸、ハイドロキノン、イソフタル酸、無水酢酸を仕込み、加熱溶融し、重縮合することにより、以下の理論構造式を有する液晶ポリエステルを得た。

なお組成の成分比はモル比を表す。

【0042】

【化7】



【0043】

各樹脂組成物の成形と物性評価を、以下の方法に従って実施した。

(1) 成形

得られたペレットを、シリンダー温度330/330/320/310℃、射速85%、金型温度90℃に設定した射出成形機[IS-80EPN：東芝機械

(株) 社製] を用いて成形を行った。ただし、比較例 1 と比較例 3 の厚さ 1.6 mm のたんざく試験片については、最大射出ゲージ圧 13 MPa にしてもショートしたので、金型温度 140℃ に設定して成形を実施した。

(2) 耐衝撃性

ASTM D256 に準拠した厚み 3.2 mm の成形片に成形した。得られた成形片を用いて、ノッチなしアイゾット衝撃強さを測定した。「Izod」と略すことがある。

【0044】

(3) 耐薬品性

厚み 3.2 mm の ASTM ダンベル試験片を 0.5% のひずみ下にて、イソプロパノール/シクロヘキサン (60/40 重量%) 混合溶液中に、23℃ で 30 分間浸漬後、溶剤が十分に揮発した後に、以下の条件にて引張り試験を行い、引張り強度 (TS_1) を得た。装置はオートグラフ (AG-5000、島津製作所 (株) 社製) を用い、チャック間距離 115 mm、試験速度 5 mm/min で引張り試験を実施した。一方、溶剤に浸漬しなかったサンプルを同様に引張り試験を実施し、引張り強度 (TS_0) を測定した。よって以下の式に従い、引張り保持率 (%) を求めた。

$$\text{引張り保持率 (\%)} = TS_1 / TS_0 \times 100$$

この値が大きいほど、耐薬品性に優れることを意味する。

また溶剤に浸漬後、取り出した時点で試験片が破断したサンプルは表中、「×」と表した。

【0045】

(4) 流動性

得られたペレットを、上記 (1) の成形条件にて、厚さ 1.6 mm の ASTM タンザク試験片を成形するに際し、1 mm ショートするときのゲージ圧力を測定した。この圧力を SSP (MPa) (「Short Shot Pressure」を略した。) とし、この値が小さいほど流動性に優れる。

(5) 耐熱性 (DTUL)

厚み 3.2 mm × 長さ 127 mm × 幅 12.7 mm の ASTM タンザク試験片

に成形した。得られた成形片を用いて、ASTM D648に準拠し、1.82 MPa荷重下での荷重たわみ温度を測定した。

【0046】

(6) 難燃性

(平均燃焼時間)

厚み1.6mm×長さ127mm×幅12.7mmのASTMタンザク試験片に成形し、Underwriters LaboratoriesのUL-94垂直燃焼試験に基づき、燃焼試験を実施した。5本の試験片について燃焼試験を実施し、10秒間の接炎後、炎を離してから炎が消えるまでの燃焼時間を t_1 (秒)とし、再び10秒間の接炎後、炎を離してから炎が消えるまでの燃焼時間を t_2 (秒)とし、各5本について、 t_1 と t_2 の平均燃焼時間を求めた。

(滴下の有無)

上記燃焼試験時、各5本の t_1 と t_2 、すなわちあわせて10点のうち、1点でも滴下があるか否かを判断した。

○：10点とも滴下のなかったもの。

×：1点でも滴下のあったもの。

【0047】

【実施例1】

ポリフェニレンエーテル (PPE-1) と液晶ポリエステル (LCP-1) を表1に示す割合 (重量部) で、250～310℃に設定したベントポート付き二軸押出機 (ZSK-25; WERNER & PFLEIDERER社製) を用いて溶融混練し、ペレットとして得た。ペレットの一部2gを100mlのクロロホルムに室温にて溶解させ、不溶物は濾過により取り除き、可溶分を大量のメタノール中に注ぐことにより、ポリマーを沈殿させた。ついでメタノールにて洗浄後、140℃で1時間減圧乾燥し、ポリマーを得た。そして、このポリマーの分子量分布をGPCを用いて測定し、さらに20,000以下の分子量の重量分率を求め各々その結果を表1に示した。また、残ったペレットを用い、上に示した方法により、成形加工し、物性評価を実施した。その結果を表1に示した。

【0048】

【実施例 2 ～ 9】

各成分を表 1 に示す割合で配合し実施例 1 と同様の操作を行った。

なお、表中 H I P S はハイインパクトポリスチレン（H 9 4 0 5、A & M 社製）
G F はガラス繊維（マイクログラス R E S 0 3 - T P 3 0、日本硝子繊維社製）
である。

【 0 0 4 9】

【比較例 1 ～ 3】

各成分を表 1 に示す割合で配合し実施例 1 と同様の操作を行った。

【 0 0 5 0】

【比較例 4】

液晶ポリエステル（L C P - 1）を用いなかったこと以外は、実施例 1 と同様に
行った。

【 0 0 5 1】

【表 1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
組	(A)	PPE-1	95				90	93			90				100
		PPE-2		95											
		PPE-3			93						5				
		PPE-4				90									
		PPE-5					80		70						
		PPE-6										95			
		PPE-7											95		
		PPE-8												95	
成		HIPS													
	(B)	LCP-1	5	5	7	5		5			2.5	5	5	5	
		LCP-2				5	10		15		2.5				
		LCP-3					10	5	15						
	(C)	GF					5		2	20					
		2万以下の分子量の重量分率(%)	16.6	19.1	10.1	21.7	25.4	16.7	16.4	23.3	16.5	4.2	31.1	34.8	15.5
物 性		Mw/Mn	2.38	2.56	2.23	2.84	3.36	2.39	2.37	3.29	2.33	2.11	3.12	3.60	2.42
		耐衝撃性 Izod(J/m)	1580	1390	1720	1480	1250	1560	1450	1370	1640	1280	509	385	1540
		耐薬品性 引張り保持率(%)	95	88	100	85	91	90	98	95	95	98	x	x	73
		流動性 SSP(MPa)	9.6	10	6.8	5.0	7.8	9.2	6.2	4.9	7.4	>13	6.0	5.4	>13
		耐熱性 DTUL(°C)	185	184	183	182	185	181	186	188	182	185	184	183	185
		難燃性 平均燃焼時間(秒)	8.0	8.5	7.8	13.5	11.3	10.5	8.3	8.7	9.9	12.1	15.4	18.8	11.1
			V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-2	V-1
		滴下の有無	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	x	○

【0052】

【発明の効果】

本発明により、耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性、難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性、流動性に優れたポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を提供することが可能となった。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性および難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性および流動性に優れたポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 (A) 20,000以下の分子量のポリマーを5～30重量%含有し、かつ分子量分布(Mw/Mn)が1.8～3.5であるポリフェニレンエーテル系樹脂30～99重量部および(B)液晶ポリエステル1～70重量部、からなる樹脂組成物。

【選択図】 選択図なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2001-064678
受付番号	50100327674
書類名	特許願
担当官	鎌田 征規 8045
作成日	平成13年 3月12日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】	申請人
【識別番号】	000000033
【住所又は居所】	大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
【氏名又は名称】	旭化成株式会社

【書類名】 手続補正書

【整理番号】 X13-00262

【提出日】 平成13年 3月12日

【あて先】 特許庁長官 殿

【事件の表示】

【出願番号】 特願2001- 64678

【補正をする者】

【識別番号】 000000033

【氏名又は名称】 旭化成株式会社

【代表者】 山本 一元

【手続補正 1】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 発明者

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市中袖5番地1 旭化成株式会社内

【氏名】 加茂 弘

【手続補正 2】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 特許出願人

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【特許出願人】

【識別番号】 000000033

【氏名又は名称】 旭化成株式会社

【代表者】 山本 一元

【その他】 社名を「旭化成株式会社」とするところ、旧社名である
「旭化成工業株式会社」と誤って記載してしまったため

【プルーフの要否】 要

職権訂正履歴（職権訂正）

特許出願の番号	特願2001-064678
受付番号	50100341575
書類名	手続補正書
担当官	宇留間 久雄 7277
作成日	平成13年 3月19日

<訂正内容1>

訂正ドキュメント

書誌

訂正原因

職権による訂正

訂正メモ

【事件の表示】が正しく記載されていないため職権により訂正しました。

訂正前内容

【事件の表示】

【出願番号】 特願2000- 64678

訂正後内容

【事件の表示】

【出願番号】 特願2001- 64678

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2001-064678
受付番号	50100341575
書類名	手続補正書
担当官	鎌田 征規 8045
作成日	平成13年 3月28日

<認定情報・付加情報>

【補正をする者】	申請人
【識別番号】	000000033
【住所又は居所】	大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
【氏名又は名称】	旭化成株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000033]

1. 変更年月日	2001年 1月 4日
[変更理由]	名称変更
住 所	大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
氏 名	旭化成株式会社